

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 02-048907

(43)Date of publication of application : 19.02.1990

(51)Int.Cl.

B29B 15/14

(21)Application number : 63-113385

(71)Applicant : KOUSEINOU JUSHI SHINSEIZOU
GIJUTSU KENKYU KUMIAI

(22)Date of filing : 09.05.1988

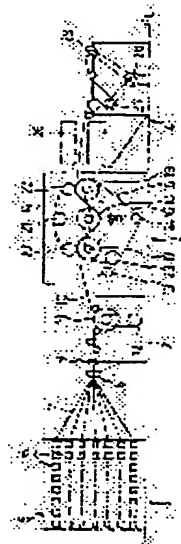
(72)Inventor : KOBAYASHI TOMOHIRO
NAKAKURA TOSHIYUKI
SAKAI HIDEO
KISHI SATOSHI
MARUKO CHIAKI

(54) MANUFACTURE OF FIBER-REINFORCED SHEETLIKE PREPREG AND ITS DEVICE

(57)Abstract:

PURPOSE: To manufacture high-performance fiber-reinforced sheetlike prepreg whose deterioration of resin is rare, by a method wherein thermoplastic resin is applied to one side belt of a pair of the belts under a softened state and a fiber sheet is passed through between the said belts.

CONSTITUTION: A continuous fiber 7 drawn out through a bobbin 6 is formed into a fiber sheet 8 by line up the same. On the one hand, thermoplastic resin such as polyether ether ketone heated and melted by an extruding machine is applied to a lower belt 15 moving on a roll heated at high temperature through a coathanger die 13. Then inside of a fiber sheet 10 is impregnated with thermoplastic resin by passing through among heating rolls 17-22 under a state where the fiber sheet 10 to which fixed tension is applied is placed between the upper and lower belts 14, 15 and after annealing within an annealing furnace, the fiber sheet is wound up by a taking-over machine. The resin is applied uniformly to the sheet, the fiber are free from disorder and no voids are among the fibers.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C): 1998,2000 Japan Patent Office

⑫ 特許公報 (B 2)

平4-42168

⑬ Int. Cl.³ 識別記号 庁内整理番号 ⑭ 公告 平成4年(1992)7月10日
 B 29 B 15/12 7722-4F
 // C 08 J 11/16 7722-4F
 B 29 K 105:08 6639-4F

請求項の数 17 (全16頁)

⑮ 発明の名称 繊維補強シート状プリブレグの製造方法及びその装置

⑯ 特 願 昭63-113385

⑰ 公 開 平2-48907

⑱ 出 願 昭63(1988)5月9日

⑲ 平2(1990)2月19日

優先権主張 ⑳ 昭62(1987)5月8日㉑ 日本(J P)㉒ 特願 昭62-112045
 ㉓ 昭62(1987)8月24日㉔ 日本(J P)㉕ 特願 昭62-210610
 ㉖ 昭62(1987)8月28日㉗ 日本(J P)㉘ 特願 昭62-216251
 ㉙ 昭62(1987)8月28日㉚ 日本(J P)㉛ 特願 昭62-216253

① 発 明 者 木 場 友 人 神奈川県横浜市戸塚区矢部町1541
 ② 発 明 者 中 倉 敏 行 神奈川県横浜市栄区尾月8-7
 ③ 発 明 者 坂 井 英 男 神奈川県横浜市栄区飯島町2882
 ④ 発 明 者 岸 智 神奈川県横須賀市衣笠栄町1-54
 ⑤ 発 明 者 丸 子 千 明 神奈川県鎌倉市大船3-11-4
 ⑥ 出 願 人 三井東圧化学株式会社 東京都千代田区霞が関3丁目2番5号
 ⑦ 代 理 人 弁理士 坂 口 信 昭
 著 査 官 佐 野 健 治

1

2

① 特許請求の範囲

- 1 熱可塑性樹脂の軟化点以上に加熱された一対のベルトの少なくとも一方のベルトに前記熱可塑性樹脂を塗布すると共に該塗膜を対向する一対のベルト間に導入し、繊維シートを該一対のベルト間を通過させることにより繊維に熱可塑性樹脂を含浸させて繊維補強シート状プリブレグを製造する方法。
- 2 繊維シートが、複数の連続繊維を一方向に揃えて経糸の如くに形成されたシートであることを特徴とする請求項1記載の繊維補強シート状プリブレグの製造方法。
- 3 繊維シートが織物であることを特徴とする請求項1記載の繊維補強シート状プリブレグの製造方法。
- 4 繊維シートが一対のベルト間を通過した後、冷却されることを特徴とする請求項1記載の繊維補強シート状プリブレグの製造方法。
- 5 繊維シートが一対のベルト間で樹脂含浸後、

該ベルト間で冷却されることを特徴とする請求項1記載の繊維補強シート状プリブレグの製造方法。

- 6 繊維シートを供給する手段と、熱可塑性樹脂の軟化点以上に加熱された加熱ロールを有するロール群に支持された一対のベルトと、ベルトの少なくとも一方に熱可塑性樹脂塗膜を付与するための手段を有する樹脂含浸部と、樹脂含浸部を通過した後引取りを行う引取部とを有することを特徴とするシート状プリブレグの製造装置。
- 7 繊維を供給するための複数のボビンと、繊維供給部と、繊維繰出時の張力を調節する機構と、繊維を一方向に揃える機構とを具備していることを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。
- 8 予め一方向に必要な本数の連続繊維をワーブビームに経糸の如く巻き付けたビームドヤーンをセットする手段を具備していることを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造

装置。

9 織布を供給する手段を具備していることを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

10 樹脂含浸部と引取部との間に前記熱可塑性樹脂を該樹脂の軟化点未満に冷却するための冷却部を有することを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

11 樹脂含浸部内に前記熱可塑性樹脂を該樹脂の軟化点未満に冷却するための冷却部を有することを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

12 樹脂含浸部の入口に有する入口加熱ロールの近傍に設けられ、繊維シートを該入口加熱ロールに圧接せしめる樹脂含浸促進ロールを有することを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

13 樹脂含浸部の出口に有する出口加熱ロールの近傍に設けられ、繊維シートを該出口加熱ロールに圧接せしめる樹脂含浸促進ロールを有することを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

14 入口加熱ロールと出口加熱ロールの中間に配置された中間加熱ロールに接設され、繊維シートを該中間加熱ロールに圧接せしめる樹脂含浸促進ロールを有することを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

15 一對のベルトの張力を調整する手段を具備することを特徴とする請求項6記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

16 張力調整手段がベルトを支持する複数のロールと、出口ロールの一つ手前のロールの前方ベルトの張力(Bx)を、一つの手前のロールの後方ベルトの張力(By)より大きくするための張力調整手段であることを特徴とする請求項15記載の繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

17 繊維シートを供給する手段と、熱可塑性樹脂の軟化点以上に加熱された入口ロール・出口ロール・中間ロールに支持されている一對のベルトと、熱可塑性樹脂塗膜を少なくとも一方のベルトに塗布するための押出機とダイとを具備する樹脂含浸部と、入口ロールの近傍に設けられている第1樹脂含浸促進ロールと、中間ロールに接設されている樹脂含浸促進ロールと、出口ロールの近傍

に設けられている出口含浸促進ロールと、出口ロールの一つ手前のロールの前方ベルトの張力(Bx)を一つ手前のロールの後方ベルトの張力(By)より大きくするための張力調整手段と、熱可塑性樹脂の含浸されたシートを冷却する手段と、ベルト間を通過した熱可塑性樹脂含浸繊維シートを巻き取る手段、とを具備したことを特徴とする繊維補強シート状プリブレグの製造装置。

発明の詳細な説明

10 【産業上の利用分野】

本発明は樹脂シートを繊維によつて補強した繊維補強シート状プリブレグの製造方法及びその装置に関する。

本発明の繊維補強シート状プリブレグは例えば積層材料等の工業用素材として利用されるものである。

【従来の技術】

繊維に熱可塑性樹脂を含浸させて繊維補強組成物を製造する方法としては、特開昭61-229534号、特開昭61-229535号、特開昭61-229536号公報に記載されているように、繊維シート（経糸のみのもの、経糸と緯糸からなる織布など）を、熱可塑性樹脂が塗膜として表面に塗布されている塗布ロールに案内して、該塗布ロール面に塗布されている熱可塑性樹脂を繊維シートに転移させ、次いで、この繊維シートの表面及び裏面を加熱ロールに接触させて、樹脂の含浸度を高める方法が知られている。

【発明が解決しようとする課題】

上記した従来の方法による装置では、塗布ロールに接触する繊維シートの裏面にはベルト等の空気遮蔽部材が存在せず解放状態にある。

又、塗布ロール及びそれに隣接する各加熱ロールが間を置いて水平方向に並設されているため、塗布ロールには押出直後の樹脂が連続して供給され、且つ連続的に繊維シートに塗布されることによつて隣接する加熱ロールへ移行する。このため当該塗布ロール表面の樹脂の劣化は連続的に移行しているように見えるので見掛け上少ないが、塗布ロールに隣接する加熱ロール表面への押出直後の樹脂の移行は繊維シートによつてのみ行われるためその量は極めて少ない。上記理由から当該加熱ロール表面に転写された樹脂は隣接する加熱ロールに殆ど移行することなくそのまま滞留するこ

とになる。従つて、これら加熱ロール表面に転写された樹脂は押出直後の樹脂と置換されることなく当該加熱ロールに高温且つ空気に接触した状態で滞留することとなる。当該加熱ロールに転写された樹脂を完全に除去することは極めて困難なため、上記滞留した樹脂は運転時間と共に樹脂の熱劣化、酸化劣化による架橋やゲル化が進行して遂には運転が不可能となるという問題がある。

また得られたシート中の樹脂は前記した様に熱劣化、酸化劣化している為に十分な強度物性を保持しておらずシートの性能劣化をも引き起す等の問題がある。

そこで本発明は、安定した連続運転が可能であり、且つ樹脂劣化の少ない高性能な繊維補強シート状プリプレグの製造方法及びその装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

本発明の上記目的は、請求項1～17に記載の発明によつて達成される。即ち、本発明の主な特徴は繊維シートを、熱可塑性樹脂の軟化点以上に加熱され且つ該熱可塑性樹脂塗膜を有し、且つ加熱ロールに面圧接された一対のベルト間に通過させることにある。

【作用】

一対のベルトは連続しており、含浸された繊維シートが、該含浸部出口においてベルトと離脱する時に若下の樹脂が該ベルト表面に転写され、例えば冷却固化されたとしても、該ベルトが含浸部入口へ再び戻つた時には、固化した転写樹脂は再加熱されて溶融され、且つ大抵の押出直後の樹脂と融合する為、樹脂がベルト間で滞留することがない。このため、従来のロール塗布の場合に問題となつていた運転時間と共に樹脂の熱劣化、酸化劣化、ゲル化を引き起すことがなく、結局長時間の連続運転が可能となる。

また前記したように熱劣化・酸化劣化等を引き起こさないため、高性能なシートが得られる。

【発明の構成】

本発明の適用において、樹脂を含浸させる対象となる繊維シートには、経糸のみでシート状に並べられたものや、経糸と緯糸で織られた織布等を含む。

本発明において、繊維シートを構成する複数の連続繊維とは、繊維を構成するフィラメントの集

合体であるロービング、ヤーン、トウという名称で知られているものを複数本用いるもので、フィラメントが充分長くて、使用する条件下で溶融熱可塑性樹脂塗膜に接して引張るのに十分な強さを有するものである。好ましい材料としては、ガラス繊維、炭素繊維、高弾性の合成樹脂繊維が挙げられるが、無機繊維の炭化ケイ素繊維やアルミナ繊維、チタン繊維、ボロン繊維、ステンレス等の金属繊維を用いることもできる。

合成樹脂繊維は、含浸させる熱可塑性樹脂との接着性を有するように表面処理されていることが好ましく、更に使用する熱可塑性樹脂の溶融温度で強度等の性能が変化しないことが必要である。合成樹脂繊維としては、例えばアラミド繊維（登録商標「ケブラー」等）が挙げられる。

前記ガラス繊維や炭素繊維は、使用する熱可塑性樹脂に合せて樹脂との接着性を向上させるために繊維表面にシラン系やチタン系のカップリング剤等の表面処理剤を塗布することが好ましい。また、含浸時に生涯とまらない範囲内でロービングやトウが取扱い時にほぐれないように集束剤を用いることができる。

上記の連続繊維は、複数本が、例えば機械方向の一方に並列に配列され、互いに交叉しないように制御されて巾方向に広げられ、適当な厚みに調節されて繊維の経糸のようなシート状に形成される。具体的には連続繊維は複数のボビンに巻かれており、各々のボビンから適当な張力をかけながら繊維が繰出され、機械方向の適当な巾で一列に節の目の如き形状を有した整列器を通してシート状に配列されることが好ましい。

シートの厚みは用いた繊維（ロービングやトウ）の太さにも依存するが、ロービングやトウの巾方向の配列、密度によつて制御できる。厚み精度は含浸状態のバラツキに影響するため、目標厚みに対して±10%以内が好ましい。特に厚みの制限はないが、厚みは10μmより大きくすれば繊維の破断を防止でき、一方1000μmより薄くすると樹脂の含浸度が高くなりポイドが少なく成形欠陥が生じない。

繊維をシート状に配列する際に、繊維のフィラメントが案内ローラとか整列器を通過するときの摩擦によつて破断することを防ぐために、作業環境の湿度を高めることは有効である。

かくして得られたシートは各ロービングやトウが交叉しないように各ロービングやトウに均一な張力が付与されることが必要である。

上記繊維シートは後述の実施例に示す様に複数の連続繊維を引き揃えてもよいが、予め一方に必要本数の連続繊維を経糸の如くワーブビームに巻き付けた所謂ビームドヤーンを用いることも可能である。上記ビームドヤーンは連続繊維を織布と成す時の経糸用として広く用いられている。

本発明において、織布とは上記の連続繊維を用いて布状に加工されたものをいい、繊維の織り方は任意である。従つて本発明に用いられる織布には、一般に平織、朱子織、綾織、杉綾織と呼ばれる織り方によつて得られたものを含むことは勿論、さらにマツト伏不織布及び該マツト伏不織布にニードルパンチ加工したもの等も含む。

繊維シートに熱可塑性樹脂を含浸させることにおいて、用いられる熱可塑性樹脂は、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル、高密度ポリエチレン、ポリプロピレン、ナイロン、ポリカーボネート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート等が用いられるが、これらに限定されない。

なお、本発明により得られた樹脂シート（ブリブreg）を構造強度を必要とする用途に用いる場合、樹脂の性能として弾性率が高く引張り強さが大きいものが好ましく、具体例として、ポリエーテルスルホン、ポリサルホン、ポリフェニレンサルファイド、熱可塑性ポリイミド、ポリエーテルイミド（商標「ULTEM」）、ポリエーテルエーテルケトン等の高グレードのエンジニアリング樹脂が好適である。

これらの樹脂を用いる場合、予め乾燥を行うのが好ましく、また繊維との接着向上の目的で樹脂にチタン系等のカブリング剤を添加することは更に好ましい。

熱可塑性樹脂は、例えば押出機の内部で溶融され、その先端に設けられたダイから押出され、予め加熱された、例えば下ベルトの表面に塗布される。樹脂温度は均一な樹脂塗膜が形成される様、各々の樹脂特性に応じて決められるものである。樹脂塗膜の巾は繊維シートの中と同等以上であればよく、塗膜の厚みは繊維シートの厚みに対応した適当な厚みに調節される。この厚みは最終的に

得られた繊維補強シート中の樹脂含有量の設定目標値によつて実験的に決められる値である。塗膜厚みは10~1000 μ mが好ましく、より好ましくは20~200 μ mである。一方、厚み精度は巾方向の前記した樹脂含有量に大きく影響するために、設定厚みに対し $\pm 10\%$ が好ましく、更に好ましくは $\pm 5\%$ 以内がよい。

このように塗膜の厚み精度を向上させる塗布方法として、通常の方法を用いることができる。

かくして繊維シートは樹脂塗膜を付与された、例えば下ベルトを介してロールに圧接され、繊維に樹脂の含浸が開始される。樹脂塗膜が繊維シートを構成するフィラメント間を通り、繊維シートの裏面まで達することによって含浸が達成されるものであるから、繊維シートのベルト、ひいてはロールへの接触圧は該シートが樹脂塗膜を押し分けて下ベルト表面に達し得る程度であれば十分であり、この接触圧は繊維シートにかけられる張力で調節される。この張力が強過ぎると繊維シートの各フィラメント間を樹脂塗膜が通らずに、繊維シートの巾方向に押し分けられてしまうので、張力は使用する樹脂の粘度に応じて決められねばならない。

本発明において樹脂の粘度は、500~50000ポイズが好ましく、より好ましくは、1000~5000ポイズである。

また本発明において繊維シート（又は織布）にかける張力は、繊維シート1~10000g/本が好ましく、より好ましくは10~5000g/本である。また織布の場合の張力は5~100000g/cm幅が好ましく、より好ましくは50~20000g/cm幅である。

樹脂を塗布された繊維シートは、次いで、上側と下側のベルトに挟まれた状態で搬送され、例えば1個又は2個以上の加熱ロールに圧接され、含浸効率を向上させた後、冷却されて引取られる。これらの加熱ロールの温度は含浸させる樹脂の軟化点以上である。

本明細書において軟化点とはメルトインデックス測定機を用い荷重5kgで測定し得る最低の温度をいう。

繊維シートは、仮に最初に下ベルトに接した面を表面とするならば、次の加熱ロールには上ベルトを介して裏面を、又次の加熱ロールでは下ベル

トを介して表面をという様に、交互に表面、裏面を下、上ベルト介してロールに圧接させながら、表面又は裏面に存在する樹脂が下又は上ベルトを介して該複数ロールにより表面から裏面へ、次いで裏面から表面へと交互の方向に繊維シートのファイメント間を流れる様に繊維シートをベルトを介してロールに圧接させることが好ましく、この様にすることによつて含浸度を向上させることができる。

本発明において、ロールの本数は用いる樹脂の特性によつて決定されるべきであり、使用する樹脂の種類によつて加熱するロールの本数を必要数に調節することは極めて有効な手段である。

本発明の適用において、ベルト表面に付着した樹脂をドクター板等で除去することは、樹脂含有量の調節及び繊維シートの表面を平滑にする効果があり、好ましいことである。又、当該樹脂は溶融、固化状態の何れの状態でも除去できるが樹脂の特性に応じてその状態を決定すべきである。

次に、樹脂を含浸した繊維シートの冷却については、特に結晶性樹脂の場合その冷却速度により結晶化度及び結晶粒度が影響されるので、使用する樹脂により冷却速度を調節することにより、繊維シート内の樹脂の結晶化度及び結晶粒度を制御することが好ましい。冷却速度の調節方法としては、含浸部と引取機の間に加熱帯を設けて、該加熱帯に温度勾配をつけることにより徐冷したり、あるいは、冷却空気の如き冷却媒体を直接繊維シートに吹付けて急冷する方法等を採用し得る。

一方、上述のような含浸樹脂の溶融状態で該繊維シートを該含浸部から離脱させる場合、含浸樹脂の種類によつて冷却時、空気等の接触により、樹脂部が劣化することがある。この場合、樹脂含浸部内に該ベルトを前記熱可塑性樹脂の軟化点未満に冷却するための冷却装置を設けるとさらに好ましい。

この場合、熱可塑性樹脂を含浸させた繊維シートは、次いで該ベルトに挟まれた状態で該樹脂の軟化点未満に冷却された後、引取部に引取られる。

冷却方法としては、大気中で徐冷する方法、上下ベルトを空気噴射、水等により強制冷却する方法等が挙げられる。前記冷却の際、加圧下、例えば一対もしくは複数対の冷却ニップロール等で該

上下ベルトを挟み該上下ベルトを介して繊維シートを加圧した状態で冷却することは繊維シートの外觀向上、脱泡の面から好ましく、又該ベルトからの繊維シートの離型性向上にも寄与する。

該ベルト表面に運転前又は運転中に離型処理を施すことは繊維シートの離型性向上の面から特に好ましい。

次に本発明の詳細を図面に示した代表的実施態様にて説明する。

10 15 20 25 30 35 40

先ず、本発明を複数の連続繊維からなる繊維シートに適用した例を説明する。

第1図に示す如く、本発明法を実施するための製造装置は繊維繰出部1、供給部2、樹脂含浸部3及び引取部4とから成る。

15 繰出部

繊維繰出部1は、複数の連続繊維を供給する手段、例えば複数のボビン6と、繊維繰出時の張力を調節する機構、例えば第2図に示す張力調節用ブレーキベルト64を有する。

20 25 30 35 40

繊維繰出部1においては、架台5に取付けられた複数のボビン6に巻かれた連続繊維7は必要な繊維数だけ繰り出される。ボビン6は第2図に示す如く、ボビン本体61が軸62に固定され、軸62が軸受63に回転可能に取付けられている。軸62には、ボビン6より繊維が繰り出される張力を調節するための張力調節用ブレーキベルト64が取付けられている。

供給部

供給部2は、ボビン本体61より繰り出される連続繊維7をガイドロール8で水平に並べ、整列器9により任意の繊維間隔及び任意の幅に整列して、繊維シート10を形成する機能を有する。整列器9は第3図及び第4図に示す如く、額縁状の枠に多数の鋼線91を張ったもので、連続繊維7は該鋼線91の間隔を1本ずつ通ることにより整列させられる。該整列器9は軸受92を有し、第4図に示す如く、矢印の方向に角度を変え得る構造を有し、この角度変更により連続繊維7も各々の間隔を調整して繊維シート10の巾と厚みを調整することができる。93は整列器9の任意の角度を選択した後固定する止めネジである。

次に繊維シート10はブレーキ12を有する張力調整ロール11により巾全体に亘り均一な張力に制御され、樹脂含浸部3へ供給される。張力調

整ロール11の表面は摩擦抵抗による張力調整が行い易いように材質としてゴム等を用いることが好ましい。張力は特に規制はなく、繊維シート10が樹脂含浸部3の含浸過程において繊維間の乱れがない程度であればよい。なお、張力調整ロール11は繰出部1におけるボビン6全部について均一な張力調整が可能であれば用いなくてもよい。

樹脂含浸部

樹脂含浸部3は、一對のベルト、即ち上ベルト14と下ベルト15を有し、繊維シートの搬送系中心に沿って、入口方向から第1加熱ロール（入口加熱ロール）17、第2加熱ロール18及びダブルロール（出口ロール）19が並設されている。該第1加熱ロール17の上方には第1ニップロール20が、下ブルロール19の上方には上ブルロール22が各々並設されている。21は上ベルト張力調整ロール、23は加熱された樹脂供給ロール、24は下ベルト張力調整ロールである。13は樹脂供給用ダイ、16は駆動用モーターである。

ベルトの加熱手段としては、加熱されているロール17、18、19、22、23の熱を、これらのロールと面圧接するベルトに熱伝導させる方式が用いられる。

出口ロール19と22の間の間隔を調整することにより得られる繊維補強シート伏ブリプレグの厚みを調整することが可能である。

なお、上下のベルト14、15には表面に付着した樹脂塗膜をかき落すスクレーパー（図示せず）が設けられることが好ましく、両ベルトが常に清浄な表面で樹脂及び繊維シート10に接触することにより繊維シート10への樹脂含浸量が変わ動しない様になっていることが好ましい。

以上の構成を有する樹脂含浸部3に繊維シート10が入ると、押出機（図示せず）で可塑性された熱可塑性樹脂をダイ13を経由して表面に該樹脂の薄膜が塗布された下ベルト15と接触し、且つ該ベルト15を介して加熱ロール17に圧接されて該樹脂を含浸し、次いで上ベルト14を介して加熱ロール18に、さらに下ベルト15を介してブルロール（加熱ロール）19に圧接される。このようにして樹脂含浸が十分に行われる。

本発明の樹脂含浸部は、高速下における含浸効

果を向上させる観点から、第6図のように改良することができる。なお第6図の実施態様は、第1図の樹脂含浸部に第3加熱ロール50及び第4加熱ロール51が付加されている。

5 先ず改良の第1は、樹脂含浸部3の入口に第1樹脂含浸促進ロール30を設けることである。

該ロール30の設けられる位置は、第1加熱ロール17に繊維シートがより強く圧接される位置が好ましく、樹脂の粘度や第1加熱ロール17と第2加熱ロール18の間のテンション方向等によつて好ましい位置を決定することができる。

図示の実施態様においては、第1加熱ロール17の上端より下がった位置に設けられ、該第1加熱ロール17を中心にしてロール30の設けられた側で図面上左下り、第2加熱ロール18の設けられた側で図面上右下がりの各テンションが作用するように構成されている。

15 ロール30と第1加熱ロール17の中心間距離は、特に限定されないが、図示の如き近接されていることが好ましい。該ロール30と第1加熱ロール17が少し離れて設けられる場合には、該両ロール30と17の間に該ロール30と協同作用を呈する他のロールを介在させることもできる。該ロール30には、第1加熱ロール17に近接又は離隔するためのロール位置調整機構が設けられて25 いることが好ましい。

繊維シート10の含浸部3への導入方向は、通常図示の如き水平方向であるが、これに限定されず、水平を維持した状態で前上り又は前下がり等のいずれであつてもよく、その場合に該シート10に本発明の作用効果を損なわない範囲で複数のガイドロールが介在していてもよいことはもとよりである。また該シート10が前上りで導入される場合には、該ロール30とロール17間におけるシート10の傾斜と同一或いは略同一の場合もあり得、その場合に該ロール30は該シート10に介在しているガイドロールと協同作用を呈することもありうる。

30 なお該ロール30の径（大きさ）は限定されない。

40 以上のような第1樹脂含浸促進ロール30を設けると、高速搬送下でも繊維シート10への樹脂含浸を促進させることができ、且つ含浸の初期段階で繊維内空気を脱気でき、良品質の製品を得る

ことができる。

改良の第2は、樹脂含浸部3の出口に出口含浸促進ロール31設けることである。

該ロール31の位置は、図示の実施態様においては出口ロール（下プルロール）19の上端より下がった位置で、繊維シート10を該出口ロール19に圧接可能な位置が好ましい。該ロール31には該ロール19に近接又は離隔するためのロール位置調整機構が設けられていることが好ましい。

ロール31と出口ロール19は近傍にあればよく、その中心距離は、特に限定されないが、図示の如き近接されていることが好ましい。該ロール31と出口ロール19が少し離れて設けられる場合には、該ロール31と出口ロール19の間に該ロール31と協同作用を呈する他のロールを介在させることもできる。

繊維シート10の含浸部3からの導出方向は、通常図示の如き水平方向であるが、これに限定されず、巻取位置によつては前上り又は前下がり等のいずれであつてもよく、その場合に該シート10に本発明の作用効果を損なわない範囲で複数のガイドロールが介在していてもよいことはもとよりである。

また該シート10が出口ロール19から前下りで導出される場合には、その導出傾斜がそのロール31と出口ロール19の間におけるシート10の傾斜と同一或いは略同一の場合もあり得、その場合に該ロール31は該シート10に介在している他のガイドロールと協同作用を呈することもありうる。

なお該ロール31の形状はフラット型に限定されず、断面湾曲型等であつてもよく、また該ロール31の径（大きさ）も限定されない。

以上のような出口含浸促進ロール31を設けた場合には、高速下でも樹脂含浸度のバラツキをなくし、繊維シート間の繊維方向に割れ目（所謂スプリット）を発生させないという効果がある。

第3の改良は、第2加熱ロール18、第3加熱ロール50及び第4加熱ロール51（これらの中から加熱ロールと称する）の各々に含浸促進ロール32、33、34を接設することである。

該第2加熱ロール18及び第4加熱ロール51は本実施態様では上方にテンションをかけるもの

であり、該含浸促進ロール32、34は各々第2及び第4加熱ロール18、51の下方に接設されることが好ましい。同様に含浸促進ロール33は第3加熱ロール50の上方に接設させることが好ましい。

含浸促進ロール32、33、34の大きさは特に限定されない。

含浸促進ロール32、33、34の設けられる位置は、加熱ロール18、50、51の真下或いは真上に限定されず、幾分前後（左右）に偏つていてもよい。

以上の含浸促進ロール32、33、34を設けることにより、搬送の高速化をはかつても繊維シート10への樹脂含浸のバラツキをなくすことができ、かつ製品厚みの調整ができる。

第4の改良は、ロール21とロール22の間及びロール19とロール24の間に各々蛇行調整ロール35、36を設けることである。

該ロール35と36は、ロール21、24が図面上上下方向の移動によつてテンションを調整するのに対し、ロールの一端のみを図面上左右方向に移動することによつてベルトの蛇行を調整する。

該ロール35と36を左右方向へ移動させる手段は特に限定されず、例えば各種スライダ等を用いることができる。

なお、該ロール35と36は、図示しないがベルト14、15の外側に接する位置に設けられ、該ベルト14と15を外側から押圧し蛇行を調整するようにしてもよく、この場合にロール35、36の材質はアルミニウム等の柔らかいものが好ましい。また、該ロール35、36は、ロール20とロール21の間、ロール23とロール24の間に各々設けられてもよい。

なおまた、ロール35、36以外に該ロール35、36と同方向又は異方向に移動可能な一又は二以上のロールを付加してもよい。

又、ロール19、22或いはロール17、20の各々のロールの一端だけを左右方向に移動させることにより、当該蛇行調整機能を上記ロールに付与させてもよい。

以上の蛇行調整ロール35、36を設けると、テンションロールのみだつた場合に生じるおそれがあつたベルトの蛇行を防止できる。

第5の改良は、出口ロール19の1つ手前のロール51の前方のベルトBxの張力を、該1つ手前のロール51の後方のベルトByの張力より大きくするための張力調整手段Tを設けることである。

該張力調整手段Tは、例えば出口ロール19に直結された駆動モーター16と、該出口ロール19の1つ手前のロール51に直結された変速機16Aとからなり、該出口ロール19の1つ手前のロール51の回転数を異ならしめる構成、即ち該変速機16Aの駆動力をロール51に伝達するように構成することが好ましい。

変速機16Aとしては、連続的又は段階的に変化させることが可能なものであればよく、自動、半自動、手動式のいずれでもよい。また変速方式は例えばベルト式、歯車式等のいずれであつてもよい。変速機の調整範囲は特に限定される訳ではないが、駆動モーター回転(数)の10~95%が好ましい。

本発明においては、出口ロール19の回転を速くし、その1つ手前のロール51の回転を遅くするように、変速機16Aの変速度合を調整することが好ましい。

上下出口ロール(上下ブルロール)19及び22に駆動力を伝達するには、駆動モーター16に連結された駆動ギヤ19Aを設け、且つ該駆動ギヤ19Aに連結されたギヤ22Aを設け、該駆動ギヤ19Aから出口ロール19に、ギヤ22Aからロール22に伝達するようにすることができる。

また、第3加熱ロール50と第4加熱ロール51は各々のギヤ50Aと51Aが噛み合っている。

以上のように各ロールが駆動源と連結された結果、ロール50、51、19、22は駆動ロールとして機能し、かつロール17、18、20、21、23、24、32、33、34、35、36が従動ロールとして機能する。

尚、ロール35、36については出口上下ロール19、22より若干遅く駆動することも可能であり、この場合、前述の蛇行調整機能をさらに向上し得る。

本文施例様においては、出口ロール19に対して一つの手前のロール51の回転を変化(制御を

含む)させることにより、ロール51の前後のベルトのテンションに変化をもたせる点に特徴を有するものである。

以上のように出口ロールと該ロールの一つ手前のロールとの回転を異ならしめる減速機構付の駆動源を設けると、各ロール間のベルトにかかるテンションを自由に変えることができ、ベルトテンションを出口から入口に向つて順次弱くした場合には、ベルトの開きを防止し、外気の吸入による樹脂劣化を防止することができる。

冷却部

上記のようにして樹脂を含浸された繊維シート10は、冷却部に設けられる冷却装置26内を通過する間に樹脂軟化点未満に冷却される。

冷却装置26内は使用した樹脂に応じた冷却速度で冷却可能に構成することができる。冷却速度の制御方法としては、冷却装置の入口から出口に向つてヒーター、熱風、冷風等を用いて温度勾配をつけることが好ましい。

該冷却装置26は第1図に示す如く、樹脂含浸部3の後工程に設けられてもよいが、これに限定されず、第7図に示すように樹脂含浸部3内に設けることもできる。

第7図に示す冷却装置26は、その詳細を示す第8図によれば、1対又は複数対のロール261で構成されており、下ロール群262は水槽263に貯えられた水により冷却される。又上ロール群264は、ノズル265から散布される水により冷却される。これらのロール表面に石綿のごとく保水性のある部材を取付けることは冷却効率の面から好ましい。

これら冷却された下、上ロール群262、264により該上下ベルト14、15が冷却されることにより、繊維シート10が冷却される。下、上ロール群262、264は第9図に示すボルト・ナット266を締付けることによりロール群のニップ力を任意に調節することができる。

このような樹脂含浸部内での冷却を行うと、該冷却時においても空気との接触をなくし酸化劣化の防止の完全化をはかることができる。

また、上下ベルトを介した冷却にすると、冷却媒体による繊維シートないし織布の汚れの心配がないため、コスト的に安い水冷等をも採用でき、プロセス的汎用性が高いという効果を有する。

以上の第7図の実施態様を更に改良して第10図のように構成すると、第6図の実施例と同様に高速含浸が可能となる。

なお、第7図及び第10図において第1図又は第6図に示す符号と同一の符号の部位は同一構成であるため、その説明を省略する。

第7図及び第10図において、ロール50は加熱されるが、ロール19及び22は加熱しない。冷却後に加熱することは好ましくないからである。

引取部

このようにして冷却された繊維シート10は引取部4の引取ロール27で張力をかけながら引取られ、巻取軸28に巻き取られる。なお、28は引取ロール27及び巻取軸29用のモーターである。

以上、本発明の実施態様について説明したが、これらに限定されるものではなく、例えば第1図に示す繊維線出部1の代わりに繊維シートセット部としてビームドヤーンを用い、該ビームドヤーンを架台にセットし、該ビームドヤーンから繊維シートを供給し、以下同様に処理することも可能である。この場合、繊維に適度のテンションがかかる様ビームドヤーンの回転を制御することは好ましいことである。

以上の実施態様は、本発明を複数の連続繊維から得られた繊維シートに適用した場合を示すものであるが、本発明を織布(シート)に適用する場合には、第5図に示す線出部1に織布原反セット部1Aを設け、該セット部1Aに織布原反をセットし、該織布を織布供給部2Aを介して前記の樹脂含浸部3に供給して、上記実施態様と同様に含浸せしめることができる。

また以上の実施態様では、ダイ13からの樹脂の供給を下ベルト15に対して行ったが、これらに限定されず、ダイ13からの樹脂の供給を上ベルト14に対して行つてもよい。その場合、ロール配置及びテンション方向は図示の例における繊維シート10の搬送系中心を境にして天地(上下)逆にすることにより、略同様の作用効果を呈することが可能である。

なお第5図において、第1図に示す符号と同一の符号の部位は同一構成であるため、その説明を省略する。また樹脂含浸部3及び引取部4は実施

例1と同一であるので図示を省略した。

【実施例】

以下、本発明を実施例により説明する。

実施例 1

第1図に示した装置の各部の仕様がボビン数100個、押出機30mmφ、ロール17~24の巾400mm、ロール径240mmφ、上下ベルト14、15の厚み0.5mm、巾350mmであるものを用いた。

連続繊維は炭素繊維(ベスファイトHTA-7-3000)を用い、熱可塑性樹脂としてポリエーテルエーテルケトン(ICI社、VICTREX PEEK)を用いた。このポリエーテルエーテルケトンの粘度は温度380℃で剪断速度100sec⁻¹において、7000ポイズのものであった。

前記100個のボビンから繰り出された連続繊維を預列させて15cmの巾の繊維シートと成した。一方、押出機で380℃に加熱溶融されたポリエーテルエーテルケトンを、コートハンガーダイから400℃に加熱された第23ロール上で50cm/分の速度で移動する下ベルトに塗膜厚60μmで塗布した。150kgの張力をかけられた前記繊維シートは上下ベルト14、15に挟まれた状態で400℃に加熱されたロール17、18、19、20、22間を第1図に示した状態で通過させて繊維シート内のポリエーテルエーテルケトンを含浸せしめ、140℃に保つた徐冷部内で徐冷した後、引取機で巻取つた。

上記運転を連続的に24時間運転を行つたが、樹脂の熱、酸化劣化による架橋やゲル化の現象もなく順調に運転することができた。

得られたシートは樹脂量が35重量%で厚み0.13mmであり、且つ繊維に吊れがなく繊維間にボイドのないものであった。又、得られたシート中の樹脂分子量保持率を測定した所95%であった。尚、ここで言う樹脂分子量保持率とは加熱前の樹脂分子量を100とした時の相対分子量パーセントである。

比較例

特開昭61-229535号の実施例1に示された装置及び製造条件で当該シートを得た。ロール上の樹脂は運転時間とともに熱、酸化劣化によるゲル化が進行し約3時間後には樹脂の流動が困難となり含浸不飽、繊維フィラメントの破断の為、運転不能となつた。

得られたシートは樹脂量が36重量%で厚み0.13mmであつた。又、繊維に乱れがなく繊維間にボイドのないものであつたがシート中の樹脂分子量保持率を測定した所、80%であり含浸時に樹脂劣化を起こしていることが判る。

実施例 2~4

実施例1において樹脂の種類及び操作条件を表1に示す如く変化させて樹脂含浸シートを得た。

表 1

	実施例2	実施例3	実施例4
熱可塑性樹脂種類	ポリエーテルサルフォン	ポリカーボネート	ナイロン66
ロール温度(℃)	350	300	280
張力 [*] (kg)	150	120	100
樹脂塗膜厚(μm)	60	60	75
徐冷却温度(℃)	150	100	100
含浸シート厚(mm)	0.13	0.12	0.12
樹脂含有量(wt%)	64	71	72
樹脂分子量保持率 ^{**} (%)	95	94	90

*1 張力:

ベルトの歪みと縦弾性係数の関係から求めた値である。尚、用いたベルトの縦弾性係数(ヤング率)を測定した結果18500kg/cm²であつた。

*2 樹脂分子量保持率:

加熱前の樹脂分子量を100としたときの相対分子量%である。

表1から明らかな様に、本発明によれば何れの樹脂を用いてもほとんど樹脂劣化のない良好な含浸シートが得られることが判る。

実施例 5

第5図(省略した部分は第1図参照)に示した装置の各部の仕様は、押出機30mmφ、ロール17~24の巾400mm、ロール径240mmφ、上下ベルト14、15の厚み0.5mm、巾350mmであるものを用いた。

連続繊維は、炭素繊維平織織布(ベスファイトW-1103)で巾200mmに調整した。又、熱可塑性樹脂は実施例1と同じポリエーテルエーテルケトンを用いた。

5 前記織布を織布原反セット部1Aに上架し、張力調整ロールにて引取方向に30kgの張力をかけた。

一方、押出機で、350℃に加熱溶融されたポリエーテルエーテルケトンを、コートハンガーガイドから400℃に加熱された第23ロール上で50cm/分の速度で移動するドベルトに塗膜厚60μmで塗布した。張力をかけられた前記織布10は上下ベルト14、15に挟まれた状態で400℃に加熱されたロール17、18、19、20、22間を第515に示した状態で通過させて織布のポリエーテルエーテルケトンを含浸せしめ、140℃に保った徐冷部内で徐冷した後、引取部で巻取つた。

上記運転を連続的に24時間運転を行つたが、樹脂の熱、酸化劣化によるゲル化の現象もなく順調20に運転することができた。

得られた繊維補強樹脂シートは樹脂量が35重量%厚み0.13mmであり、且つ繊維に乱れがなく繊維間にボイドのないものであつた。又得られた繊維補強樹脂シート中の樹脂分子量保持率を測定した25所95%であつた。

実施例 6~15

第1図における樹脂含浸部を第6図に示した装置に代えた各部の仕様は、ポピン数100個、押出機30mmφ、ロール17、18、19、20、21、22、23、24、50、51の巾400mm、ロール径240mmφ、上下ベルト14及び15の厚み0.5mm、巾350mmであるものを用いた。ただしロール30、32、33、34、35、36及び出口含浸促進ロール31、減速機16Aについては35表2のように変化させた。

また含浸促進ロール30はロール巾400mm、ロール径100mmφのものを用い、さらに含浸促進ロール32、33、34はロール巾400mm、ロール径120mmのものを用いた。

40 ロール19と51の回転数は、表2のように設定した。なお減速機16Aとしてパウダークラッチを用いた。

連続繊維は炭素繊維(ベスファイトHTA-7-3000)を用い、熱可塑性樹脂として表2に示す

21

ものを用いた。

前記100個のボビンから繰り出された連続繊維を整列させて15cmの巾の繊維シートと成した。方、押出機で溶融された表2に示す樹脂をコートハンガーダイから表2に示す如く加熱されたロール23上で75cm/分の速度で移動する下ベルト15に塗膜厚を表2の厚さに塗布した。150kgの張力をかけられた前記繊維シートは上下ベルト14、15に挟まれた状態で表2に示す如く加熱されたロール17、18、20、50、51、19、22間を第1図、第6図に示した状態で通過させて繊維シート内の表2に示す樹脂を合浸せしめた。

22

次いで表2に示す温度に保つた冷却装置で徐冷した後、引取機で巻取った。

上記運転を連続的に24時間運転を行つたが、樹脂の熱、酸化劣化によるゲル化の現象が全く見られず順調に運転することができた。

表2に上述の実験条件及びその結果を示した。なお表中の※は下記の通りであり。

※3減速機16Aが無い場合は、ロール17、

18、50、51を駆動するための駆動用モーターを駆動用モーター16と別に設けた。

※4ボイド率：

樹脂含浸シートの比重、繊維含有重量百分率から求めた値。

表

2

条件	樹脂供給	樹脂名	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10
			ポリエーテルエーテルケトン	ポリエーテルエーテルケトン	ポリエーテルサルフォン	ポリカーボネート	ナイロン 66
		ロール23温度 (℃)	400	400	350	300	280
		下ベルト上の塗膜厚(μm)	60	60	60	60	75
	ロール30の有無		有	有	有	有	有
	ロール32、33、34の有無		有	有	有	有	有
	ロール17、18、20、50、51、19、22の加熱温度 (℃)		400	400	350	300	280
	減速機16Aの有無		有	有	有	有	有
	回転数 (rpm)	ロール19	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
		ロール51	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
張力 ^{*)} (kg/cm ²)	ロール19と51の間のベルト	350	350	350	350	350	
	ロール19と50の間のベルト	250	250	250	250	250	
ロール31の有無		無	有	無	無	無	
ロール35、36の有無		無	有	無	無	無	
冷却温度(℃) (上下ニップロール温度)		140	140	150	100	100	
結果	樹脂の酸化劣化		無	無	無	無	無
	ブリブ厚み (mm)		0.13	0.13	0.13	0.12	0.12
	ボイド率 ^{*)} (%)		0.3	0.2	0.3	0.2	0.1
	樹脂分子量保持率 ^{*)} (%)		98	98	98	96	94

条件	樹脂供給	樹脂名	実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15
			ポリエーテルエーテルケトン	ポリエーテルエーテルケトン	ポリエーテルエーテルケトン	ポリエーテルエーテルケトン	ポリエーテルエーテルケトン
		ロール23温度 (°C)	400	400	400	400	400
		下ベルト上の塗膜厚 (μm)	60	60	60	60	60
		ロール30の有無	有	無	無	無	無
		ロール32、33、34の有無	無	無	有	無	無
		ロール17、18、20、50、51、19、22の加熱温度 (°C)	400	400	400	400	400
		減速機16Aの有無	無 ²³	無 ²³	無 ²³	無 ²³	有
	回転数 (rpm)	ロール19	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
		ロール51	1.0	1.0	1.0	1.0	0.9
	張力 ²¹ (kg/cm)	ロール19と51の間のベルト	300	300	300	300	350
		ロール19と50の間のベルト	300	300	300	300	250
		ロール31の有無	無	有	無	無	無
		ロール35、36の有無	無	無	無	有	無
		冷却温度 (°C) (上下ニップロール温度)	140	140	140	140	140
結果		樹脂の酸化劣化	無	無	無	無	無
		ブリブ厚み (mm)	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13
		ボイド率 ²⁴ (%)	1.2	1.2	1.0	1.2	1.2
		樹脂分子量保持率 ²⁵ (%)	97	95	95	97	97

実施例 16

第1図の繰出部1、供給部2を第5図の様に變更した装置を用いて実施した。尚、樹脂含浸部の各仕様は実施例6と同じであつた。

連続繊維は炭素繊維平織織布（ベスファイトW 35-1103）を巾200mmに調整したものを用了。又、熱可塑性樹脂は実施例6と同じポリエーテルエーテルケトンを用いた。

前記織布を繰出部1に上架し、張力調整ロールにて引取方向に30kgの張力をかけた。次いで実施例6と同じ条件で含浸後、徐冷炉内で徐冷して樹脂含浸シートを得た。得られた樹脂含浸シートは厚み0.13mm、ボイド率0.4%、樹脂分子量保持率98%のものであつた。

実施例 17

第1図に示す樹脂含浸部及び冷却装置を第7図のように變更した装置を用いて、実施例1と同様に含浸、冷却、巻取を行った。

上記運転を連続的に24時間運転を行ったが、樹脂の熱、酸化劣化によるゲル化の現象が全く見られず順調に運転することができた。

得られたシートは樹脂量が35重量%で厚み0.13mmであり、且つ繊維に乱れがなく繊維間にボイドのないものであつた。又得られたシート中の樹脂分子量保持率を測定した所97%であつた。

実施例 18~20

実施例17において樹脂の種類及び操作条件を表3に示す如く変化させて樹脂含浸シートを得た。

表

3

	実施例 18	実施例 19	実施例 20
熱可塑性樹脂種類	ポリエーテルサルフォン	ポリカーボネート	ナイロン66
加熱ロール温度 (°C)	350	300	280
張力 ^{*1} (kg)	150	120	100
樹脂塗膜厚 (μm)	60	60	75
冷却装置温度 ^{*2} (°C)	150	100	100
含浸シート厚 (mm)	0.13	0.12	0.12
樹脂含有量 (wt%)	64	71	72
樹脂分子量保持率 ^{*2} (%)	97	96	94

*5 冷却装置の温度は冷却装置の出口でのベルトの温度を計ったものである。

表3から明らかな様に、本発明によれば何れの樹脂を用いてもほとんど樹脂劣化のないより良好な含浸シートが得られることが判る。

実施例 21

第1図の繰出部1、供給部2を第5図の様に変更した装置を用いて実施した。尚、樹脂含浸部の各仕様は実施例17と同じであった。

連続繊維は炭素繊維平織織布（ベスファイトW 30-1103）を巾200mmに調整したものを用いた。又、熱可塑性樹脂は実施例17と同じポリエーテルエーテルケトンを用いた。

前記織布を繰出部1Aに上架し、張力調整ロールにて引取方向に30kgの張力をかけた。次いで実施例17と同じ条件で含浸後、徐冷炉内で徐冷して樹脂含浸シートを得た。

- 5 得られたシートは樹脂量が35重量%、厚み0.13mmであり、且つ繊維に乱れがなく、繊維間にボイドのないものであった。又、得られたシート中の樹脂分子量保持率を測定した所97%であった。

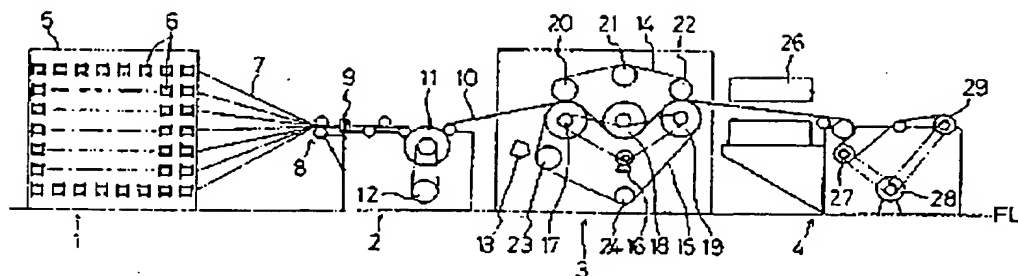
【発明の効果】

- 10 本発明によれば、安定した連続運転が可能であり、且つ樹脂劣化の少ない高性能な繊維補強シート状プリプレグの製造方法及びその装置を提供することができる。

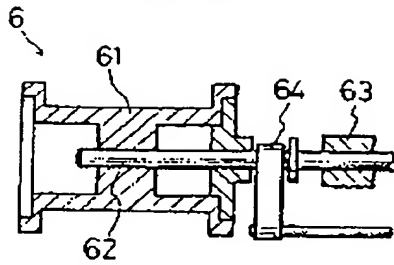
図面の簡単な説明

- 15 第1図は本発明の一実施態様を示す概略側面図、第2図は連続繊維を巻付けられたボビンの取付け構造を示す断面図、第3図は連続繊維を集め配列して繊維シートと成す整列器の正面図、第4図は同上の平面図（全体の半分だけ繊維シートを表している）、第5図は本発明を織布に適用する場合の一例を示す要部側面図、第6図は樹脂含浸部を改良した一例を示す概略側面図、第7図は樹脂含浸部の他の例を示す側面図、第8図は冷却装置の概略断面図、第9図は同じく概略側面図、第10図は樹脂含浸部の他の例を示す詳細図である。

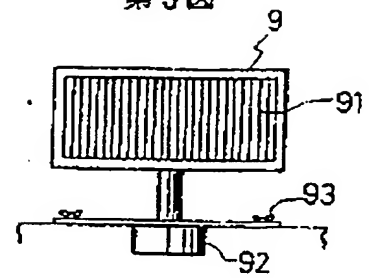
第1図



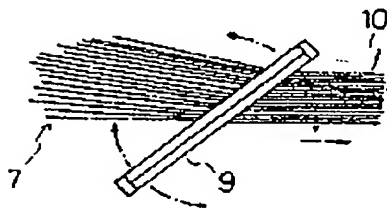
第2図



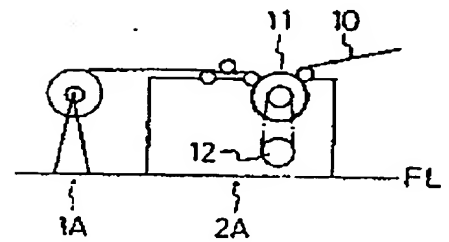
第3図



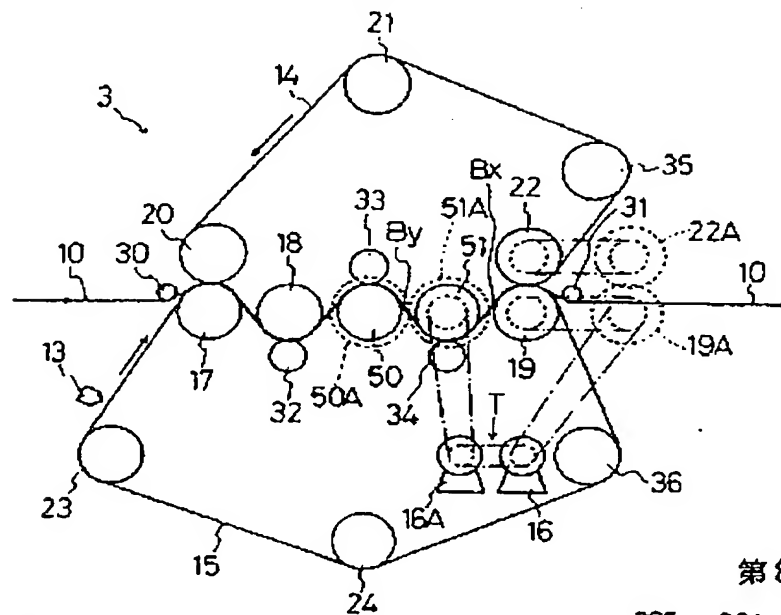
第4図



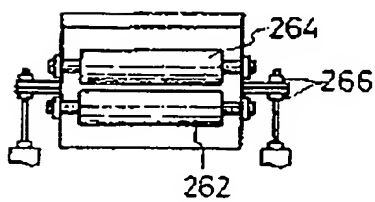
第5図



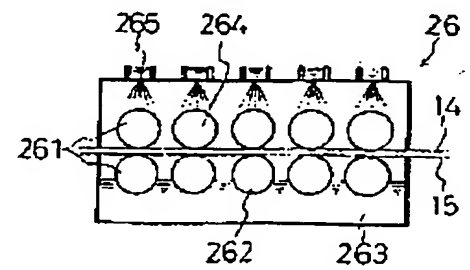
第6図



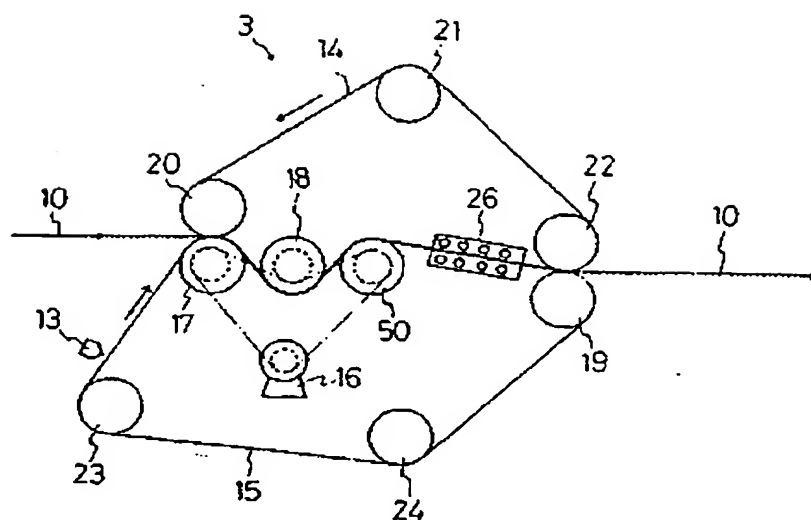
第9図



第8図



第7図



第10図

